- (19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro
- AIPO OMPIO



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 13. November 2003 (13.11.2003)

**PCT** 

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 03/093269 A2

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C07D 487/04, 401/04, 231/38, 231/42, A01N 43/90

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP03/04137

(22) Internationales Anmeldedatum:

22. April 2003 (22.04.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

102 19 435.1 2. Mai 2002 (02.05.2002) DE

- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER CROPSCIENCE AG [DE/DE]; Alfred-Nobel-Str. 50, 40789 Monheim (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder US): LINKER, (nur für Karl-Heinz [DE/DE]; Kurt-Schumacher-Ring 51377 Leverkusen (DE). ANDREE, Roland [DE/DE]; Dechant-Miebach-Weg 37, 40764 Langenfeld (DE). HOISCHEN, Dorothee [DE/DE]; Hortensienstr.31, 40474 Düsseldorf (DE). SCHWARZ, Hans-Georg [DE/DE]; Heinenbusch 19 e, 40764 Langenfeld (DE). DREWES, Mark, Wilhelm [DE/DE]; Goethestr. 40764 Langenfeld (DE). DAHMEN, Peter [DE/DE]; Altebrückerstr. 61, 41470 Neuss (DE). FEUCHT, Dieter [DE/DE]; Ackerweg 9, 40789 Monheim (DE). PONTZEN, Rolf [DE/DE]; Am Kloster 69, 42799 Leichlingen (DE). LÖSEL, Peter [GB/DE]; Lohrstr. 90 a, 51371 Leverkusen-Hitdorf (DE).
- (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER CROPSCIENCE AG; Law and Patents, Patents and Licensing, 51368 Leverkusen (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE,

GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

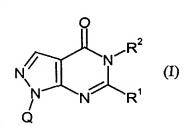
(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

## Erklärungen gemäß Regel 4.17:

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für die folgenden Bestimmungsstaaten AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW, ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)
- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für die folgenden Bestimmungsstaaten AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

- (54) Title: SUBSTITUTED PYRAZOLO-PYRIMIDINE-4-ONES
- (54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE PYRAZOLO-PYRIMIDIN-4-ONE



- (57) **Abstract:** The invention relates to compounds of formula (I), in which Q,  $R^1$ , and  $R^2$  have the meaning indicated in the description, methods for the production thereof, and the use thereof as herbicides and/or nematicides.
- (57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft Verbindungen der Formel (I), in welcher Q,  $R^1$  und  $R^2$  die in der Beschreibung angegebene Bedeutung haben, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide und/oder Nematizide.



SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW, ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)

hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, die Priorität einer früheren Anmeldung zu beanspruchen (Regel 4.17 Ziffer iii) für alle Bestimmungsstaaten

## Veröffentlicht:

 ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

## Substituierte Pyrazolo-pyrimidin-4-one

Die Erfindung betrifft neue substituierte Pyrazolo-pyrimidin-4-one, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Pflanzenbehandlungsmittel, insbesondere als Herbizide und als Nematizide.

Bestimmte substituierte Pyrazolo-pyrimidin-4-one, wie z.B. die Verbindung 1,5-Di-hydro-6-methyl-1-(2,4,6-trichlor-phenyl)-4H-pyrazolo-[3,4-d]-pyrimidin-4-on, sind bereits bekannt (vgl. WO 94/13677, US 6,218,397). Diese Verbindungen haben jedoch keine Bedeutung als Pflanzenbehandlungsmittel erlangt.

Es wurden nun neue substituierte Pyrazolo-pyrimidin-4-one der allgemeinen Formel (I)

15

10

5

in welcher

Q für jeweils durch mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten 20 aus der Reihe Nitro, Cyano, Halogen und jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Aryl oder Heteroaryl mit jeweils bis zu 10 Kohlenstoffatomen und gegebenenfalls bis zu 5 Stickstoffatomen und/oder gegebenenfalls einem Sauerstoff- oder Schwefelatom steht,

-2-

 $\mathbb{R}^1$ für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C1-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C2-C6-Alkenyl oder C2-C6-Alkinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl 5 substituiertes C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C1-C4-Alkyl, C1-C4-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit jeweils bis zu 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls bis zu 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für gege-10 benenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Heterocyclyl mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, bis zu 5 Stickstoffatomen und/oder einem Sauerstoff- oder Schwefel-atom steht, und

15 R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl oder C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkinyl steht,

20 gefunden,

wobei die vorbekannte Verbindung 1,5-Dihydro-6-methyl-1-(2,4,6-trichlor-phenyl)-4H-pyrazolo-[3,4-d]-pyrimidin-4-on (vgl. WO 94/13677) durch Disclaimer ausgenommen ist.

25

Die zu den substituierten Pyrazolo-pyrimidin-4-onen der allgemeinen Formel (I) isomeren substituierten Pyrazolopyrimidine der allgemeinen Formel (Ia)

WO 03/093269

in welcher

15

5 Q, R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

sind ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Erfindung.

In den Definitionen sind die Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl oder Alkenyl - auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie in Alkoxy - jeweils geradkettig oder verzweigt.

Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein; wobei bei Mehrfachsubstitution die Substituenten gleich oder verschieden sein können.

Bevorzugte Substituenten bzw. Bereiche der in den oben und nachstehend aufgeführten Formeln vorhandenen Reste werden wie folgt definiert:

20 Q steht bevorzugt für jeweils durch mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, jeweils gegebenenfalls durch 1 bis 3 Fluor- und/oder Chlor-atome substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit bis zu 5 Kohlenstoffatomen, bis zu 3 Stickstoffatomen und/oder gegebenenfalls einem Sauerstoff- oder Schwefelatom.

oder Schwefel-atom.

WO 03/093269

 $\mathbb{R}^1$ 

5

10

15

20

25

steht bevorzugt für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C2-C5-Alkenyl oder C2-C5-Alkinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls bis zu 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Heterocyclyl mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, bis zu 4 Stickstoffatomen und/oder einem Sauerstoff-

R<sup>2</sup> steht bevorzugt für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkenyl oder C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkinyl.

30 Q steht besonders bevorzugt für jeweils durch mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, 5

10

Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Fluormethyl, Chlormethyl, Brommethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Bromethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Chlorfluorethyl, Trifluorethyl, Trichlorethyl, Chlordifluorethyl, Fluordichlorethyl, Tetrafluorethyl, Pentafluorethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluormethylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Trifluormethylsulfonyl substituiertes Phenyl, Pyridinyl, Pyrimidinyl, Pyrazolyl, Furyl oder Thienyl.

15 R<sup>1</sup>2025

steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, n-, i-, s- oder t-Butoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Di-Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Trifluormethyl, chlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder iWO 03/093269

- 6 -

Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Chlordifluorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlordifluorethoxy, Oder Trifluorethoxy substituiertes Pyridinyl, Pyrimidinyl, Furyl, Tetrahydrofuryl oder Thienyl.

PCT/EP03/04137

5

10

 $\mathbb{R}^2$ 

Q

steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxy-carbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl.

15

steht ganz besonders bevorzugt für jeweils durch mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluormethylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Trifluormethylsulfonyl substituiertes Phenyl, Pyridinyl oder Pyrazolyl.

25

30

20

R<sup>1</sup> steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Chlorfluorethyl, Trifluorethyl, Tetrafluorethyl, Pentafluorethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl,

WO 03/093269

für Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Fluorpropenyl, Chlorpropenyl, Difluorpropenyl, Dichlorpropenyl, Chlorfluorpropenyl, Fluorbutenyl, Chlorbutenyl, Difluorbutenyl, Dichlorbutenyl, Chlorfluorbutenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Di-Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Trifluormethyl, chlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Pyridinyl, Pyrimidinyl, Furvl. Tetrahydrofuryl oder Thienyl.

20

5

10

15

R<sup>2</sup> steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl.

25

Erfindungsgemäß bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

-8-

Erfindungsgemäß besonders bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

- Erfindungsgemäß ganz besonders bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als ganz besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.
- Bevorzugt werden auch solche Verbindungen der Formel (I), in denen Q durch zwei
  Reste substituiert ist. Eine ganz besonders bevorzugte Gruppe sind auch diejenigen
  Verbindungen der Formel (I), in welchen
- Q für jeweils durch mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluorethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Trifluormethylsulfonyl substituiertes Phenyl oder Pyridinyl steht.
- Eine ganz besonders bevorzugte Gruppe sind diejenigen Verbindungen der Formel

  (I) in welcher
- Q für Phenyl steht, welches mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten in 2- und 4-Position und gegebenenfalls einen weiteren Substituenten in 6-Position enthält, wobei die Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl,

Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluorethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl und Trifluormethylsulfonyl ausgewählt sind,

10

15

20

25

 $R^1$ 

5

für Wasserstoff, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlor-Chlorfluorethyl, Trifluorethyl, Tetrafluorethyl, ethyl, Pentafluorethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, für Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Fluorpropenyl, Chlorpropenyl, Difluorpropenyl, Dichlorpropenyl, Chlorfluorpropenyl, Fluorbutenyl, Chlorbutenyl, Difluorbutenyl, Dichlorbutenyl, Chlorfluorbutenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluor-

30

- 10 -

ethoxy substituiertes Pyridinyl, Pyrimidinyl, Furyl, Tetrahydrofuryl oder Thienyl steht, und

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl steht.

5

15

20

25

Ganz besonders sind hierbei diejenigen Verbindungen hervorzuheben, bei denen Q für 2,4-Dichlor-phenyl, 2,4,6-Trichlor-phenyl, 2-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl oder 2,6-Dichlor-4-trifluormethyl-phenyl steht.

Eine weitere ganz besonders bevorzugte Gruppe sind diejenigen Verbindungen der Formel (I) in welcher

- Gustituenten in 3- und 5-Position und gegebenenfalls einen weiteren Substituenten in 6-Position enthält, wobei die Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluormethylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl ausgewählt sind,
- R<sup>1</sup> für Wasserstoff, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Di-30 fluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlor-

5

10

15

20

25

Trifluorethyl, Tetrafluorethyl, Pentafluorethyl, ethyl, Chlorfluorethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, für Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Fluorpropenyl, Chlorpropenyl, Difluorpropenyl, Dichlorpropenyl, Chlorfluorpropenyl, Fluorbutenyl, Chlorbutenyl, Difluorbutenyl, Dichlorbutenyl, Chlorfluorbutenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Pyridinyl, Pyrimidinyl, Furyl, Tetrahydrofuryl oder Thienyl steht, und

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl steht.

Ganz besonders sind hierbei diejenigen Verbindungen hervorzuheben, bei denen Q für 3,5-Dichlor-pyridin-2-yl oder 3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl steht.

- 12 -

Eine weitere ganz besonders bevorzugte Gruppe sind diejenigen Verbindungen der Formel (I) in welcher

5 Q für Pyrazol-3-yl steht, welches mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten in 1- und 5-Position und gegebenenfalls einen weiteren Substituenten in 4-Position enthält, wobei die Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluorethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl ausgewählt sind,

 $R^1$ 

20

25

30

für Wasserstoff, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Chlorfluorethyl, Trifluorethyl, Tetrafluorethyl, Pentafluorethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, für Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Fluorpropenyl, Chlorpropenyl, Difluorpropenyl, Dichlorpropenyl, Chlorfluorpropenyl, Fluorbutenyl, Chlorbutenyl, Difluorbutenyl, Dichlorbutenyl, Chlorfluorbutenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordi-

- 13 -

fluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Pyridinyl, Pyrimidinyl, Furyl, Tetrahydrofuryl oder Thienyl steht, und

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl steht.

Ganz besonders sind hierbei diejenigen Verbindungen hervorzuheben, bei denen Q für 5-Difluormethoxy-1-methyl-pyrazol-3-yl oder 5-Difluormethoxy-1,4-dimethyl-pyrazol-3-yl steht.

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restedefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- oder Zwischenprodukte. Diese Restedefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

Die neuen substituierten Pyrazolo-pyrimidin-4-one der allgemeinen Formel (I) zeichnen sich durch starke und selektive herbizide und nematizide Wirksamkeit aus.

5

10

15

20

25

Man erhält die neuen substituierten Pyrazolo-pyrimidin-4-one der allgemeinen Formel (I), wenn man

(a) 5-Amino-1-aryl-pyrazol-4-carbonsäureamide der allgemeinen Formel (II)

$$\begin{array}{c} O \\ NH_2 \\ NH_2 \end{array} \qquad (II)$$

5

in welcher

- Q die oben angegebene Bedeutung hat,
- mit Carbonsäure-orthoestern der allgemeinen Formel (III)

$$R^1$$
-(OR')<sub>3</sub> (III)

in welcher

- 15 R<sup>1</sup> die oben angegebene Bedeutung hat und
  - R' für Alkyl steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt, oder wenn man

(b) 5-Amino-1-aryl-pyrazol-4-carbonitrile der allgemeinen Formel (IV)

WO 03/093269

in welcher

- Q die oben angegebene Bedeutung hat,
- 5 mit Carbonsäureanhydriden der allgemeinen Formel (V)

$$\begin{array}{cccc}
O & R^1 \\
O & O
\end{array}$$

$$\begin{array}{cccc}
(V)
\end{array}$$

in welcher

R<sup>1</sup> die oben angegebene Bedeutung hat,

10

15

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt,

oder wenn man

(c) 5-Amino-1-aryl-pyrazol-4-carbonsäureamide der allgemeinen Formel (II)

$$NH_2$$
 $NH_2$ 
 $NH_2$ 
 $NH_2$ 
 $NH_2$ 
 $NH_2$ 

in welcher

Q die oben angegebene Bedeutung hat,

mit Carbonsäureanhydriden der allgemeinen Formel (V)

$$O \longrightarrow R^1$$

$$O \longrightarrow O$$

$$R^1$$

$$(V)$$

in welcher

5 R<sup>1</sup> die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt,

- 10 oder wenn man
  - (d) 5-Acylamino-1-aryl-pyrazol-4-carbonsäureamide der allgemeinen Formel (VI)

$$\begin{array}{c} O \\ NH_2 \\ N \\ N \\ Q \\ O \\ R^1 \end{array} \hspace{1cm} (VI)$$

- in welcher
  - Q und R<sup>1</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,
- gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Kondensationshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt,
  oder wenn man

(e) substituierte Pyrazolo-pyrimidin-4-one der allgemeinen Formel (Ib)

$$\begin{array}{c|c}
O \\
N \\
N \\
R^1
\end{array}$$
(Ib)

in welcher

5 Q und R<sup>1</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,

mit Alkylierungs-, Alkenylierungs- oder Alkinylierungsmitteln der allgemeinen Formel (VII)

$$X-R^2$$
 (VII)

10

oder der allgemeinen Formel (VIII)

$$R^2$$
-O-SO<sub>2</sub>-O- $R^2$  (VIII)

worin jeweils

- 15 R<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung hat und
  - X für Halogen steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt.

Verwendet man beispielsweise 5-Amino-1-(3,5-dichlor-pyridin-2-yl)-pyrazol-4-carboxamid und Orthoameisensäure-trimethylester als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

5

10

15

Verwendet man beispielsweise 5-Amino-1-(3-chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-pyrazol-4-carbonitril und Acetanhydrid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

 $CH_3$   $CH_3$ 

Verwendet man beispielsweise 5-Amino-1-(2,4-dichlor-phenyl)-pyrazol-4-carboxamid und Propionsäureanhydrid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf

PCT/EP03/04137

beim erfindungsgemäßen Verfahren (c) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

$$NH_2$$
 +  $C_2H_5$ - $CO$ - $CO$ - $CO$ - $C_2H_5$   $CI$ 

5

Verwendet man beispielsweise 1-(2-Chlor-4-trifluormethyl-phenyl)-5-trifluoracetyl-amino-pyrazol-4-carboxamid als Ausgangsstoff, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (d) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

10

$$CI$$
 $NH_2$ 
 $NH$ 

Verwendet man beispielsweise 1-(2,6-Dichlor-4-trifluormethyl-phenyl)-6-methyl-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on und Methylbromid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (e) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (c) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden 5-Amino-1-arylpyrazol-4-carbonsäureamide sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) hat Q vorzugsweise diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder als ganz besonders bevorzugt für Q angegeben worden ist.

10

15

5

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (II) sind mit Ausnahme der Verbindung 5-Amino-1-(2,4,6-trichlor-phenyl)-pyrazol-4-carboxamid (vgl. WO-94/13677) noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind unter Ausnahme der Verbindung 5-Amino-1-(2,4,6-trichlor-phenyl)-pyrazol-4-carboxamid auch als neue Stoffe Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Man erhält die 5-Amino-1-aryl-pyrazol-4-carbonsäureamide der allgemeinen Formel (II), wenn man 5-Amino-1-aryl-pyrazol-4-carbonitrile der allgemeinen Formel (İV)

20

in welcher

- 21 -

Q die oben angegebene Bedeutung hat,

auf übliche Weise, beispielsweise durch Umsetzung mit Schwefelsäure, bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C hydrolysiert (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Carbonsäure-orthoester sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der Formel (III) hat R<sup>1</sup> vorzugsweise diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder als ganz besonders bevorzugt für R<sup>1</sup> angegeben worden ist; R' steht vorzugsweise für Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (III) sind bekannte organische Synthesechemikalien.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden 5-Amino-1-aryl-pyrazol-4-carbonitrile sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In der Formel (IV) hat Q vorzugsweise diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder als ganz besonders bevorzugt für Q angegeben worden ist.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. DE 34 08 727, DE 34 20 985, DE 35 20 327, DE 35 20 331, DE 35 40 839, DE 36 25 686, DE 195 30 606, DE 196 23 892, DE 196 31 865, EP 542 388, GB 21 23 420, US 5,167,691, US 5,198,014, US 5,250,504, WO 83/00331, WO 94/08999).

5

10

15

20

WO 03/093269

Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Carbonsäure-anhydride sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In der Formel (V) hat R<sup>1</sup> vorzugsweise diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder als ganz besonders bevorzugt für R<sup>1</sup> angegeben worden ist.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (V) sind bekannte organische Synthesechemikalien.

10

15

5

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (d) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden 5-Acylamino-1-aryl-pyrazol-4-carbonsäureamide sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In der Formel (VI) haben Q und R<sup>1</sup> vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder als ganz besonders bevorzugt für Q und R<sup>1</sup> angegeben worden sind.

20

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (VI) sind mit Ausnahme der Verbindung 1-(2,6-Dichlor-4-trifluormethylthio-phenyl)-5-propionylamino-pyrazol-4-carboxamid (vgl. DE 34 20 985) noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind unter Ausnahme der Verbindung 1-(2,6-Dichlor-4-trifluormethylthio-phenyl)-5-propionylamino-pyrazol-4-carboxamid als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

25

Man erhält die neuen 5-Acylamino-1-aryl-pyrazol-4-carbonsäureamide der Formel (VI), wenn man 5-Amino-1-aryl-pyrazol-4-carbonsäureamide der allgemeinen Formel (II)

- 23 -

$$\begin{array}{c} & & \\ & & \\ N & \\ N & \\ N & \\ O & \\ \end{array}$$

in welcher

Q die oben angegebene Bedeutung hat,

5

15

20

25

mit Acylierungsmitteln der allgemeinen Formel (IX)

$$X^{1}-R^{1} \tag{IX}$$

in welcher

10 R<sup>1</sup> die oben angegebene Bedeutung hat und

X<sup>1</sup> für Halogen, insbesondere für Fluor, Chlor oder Brom steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels, wie z.B. Natriumhydrid, Kaliumcarbonat oder Pyridin, und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Acetonitril, bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C umsetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die im Verfahren verwendeten Verbindungen der Formel (IX) sind bekannte Synthesechemikalien.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (e) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden substituierten Pyrazolo-pyrimidin-4one sind durch die Formel (Ib) allgemein definiert. In der Formel (Ib) haben Q und R<sup>1</sup> vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevor-

- 24 -

zugt, besonders bevorzugt oder als ganz besonders bevorzugt für Q und R<sup>1</sup> angegeben worden sind.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (Ib) sind als neue Stoffe Gegenstand der vorliegenden Anmeldung; sie können nach den erfindungsgemäßen Verfahren (a) bis (d) hergestellt werden.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (e) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Alkylierungs-, Alkenylierungs- oder Alkinylierungsmittel sind durch die Formeln (VII) und (VIII) allgemein definiert. In den Formeln (VII) und (VIII) hat R² vorzugsweise diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder als ganz besonders bevorzugt für R² angegeben worden ist; X steht in Formel (VII) vorzugsweise für Fluor, Chlor, Brom oder Iod, insbesondere für Chlor oder Brom.

Die Ausgangsstoffe der Formeln (VII) und (VIII) sind bekannte organische Synthesechemikalien.

20

5

10

15

Das erfindungsgemäße Verfahren (d) wird unter Verwendung eines Kondensationshilfsmittels durchgeführt. Als Kondensationshilfsmittel sind hierbei vor allem basische Verbindungen geeignet. Hierzu gehören insbesondere Ammoniak oder Amine, wie z.B. Methylamin, Ethylamin, n- oder i-Propylamin, n-, i-, s- oder t-Butylamin, Dimethylamin, Diethylamin, Dipropylamin oder Dibutylamin, Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin oder Tributylamin, sowie auch Alkalimetall- oder Erdalkalimetall-hydroxide, wie z.B. Natrium-, Kalium-, Magnesiumoder Calciumhydroxid, oder Alkoholate, wie z.B. Natrium- oder Kalium-methylat, -ethylat, n- oder i-propylat, n-, i-, s- oder t-Butylat.

25

5

10

15

20

25

30

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c) und (e) zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) werden vorzugsweise unter Verwendung eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel durchgeführt. Als Reaktionshilfsmittel für die erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c) und (e) kommen im Allgemeinen die üblichen anorganischen oder organischen Basen oder Säureakzeptoren in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetall- -acetate, -amide, -carbonate, -hydrogencarbonate, -hydride, -hydroxide oder -alkanolate, wie beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Calcium-acetat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-amid, Natrium-, Kalium- oder Calcium-carbonat, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrogencarbonat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrid, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, Natrium- oder Kalium--methanolat, -ethanolat, -n- oder -i-propanolat, -n-, -i-, -s- oder -t-butanolat; weiterhin auch basische organische Stickstoffverbindungen, wie beispielsweise Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropylamin, N.N-Dimethyl-cyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin, N,N-Dimethyl-anilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, 4-Dimethylamino-pyridin, N-Methyl-piperidin, 1,4-Diazabicyclo[2.2.2]-octan (DABCO), 1,5-Diazabicyclo[4.3.0]-non-5-en (DBN), oder 1.8-Diazabicyclo[5.4.0]-undec-7-en (DBU).

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) bis (e) zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) werden vorzugsweise unter Verwendung eines oder mehrerer Verdünnungsmittel durchgeführt. Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren kommen vor allem inerte organische Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-keton; Nitrile, wie Acetonitril,

- 26 -

Propionitril oder Butyronitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methyl-formanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester; Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, Ethylenglykolmonomethylether; Ethylenglykolmonoethylether, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

5

10

15

20

25

30

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren in einem größeren Bereich variiert werden. Im Allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -30°C und +150°C, vorzugsweise zwischen 0°C und 120°C.

Die erfindungsgemäßen Verfahren werden im Allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, die erfindungsgemäßen Verfahren unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im Allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - durchzuführen.

Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren werden die Ausgangsstoffe im Allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten in einem größeren Überschuss zu verwenden. Die Umsetzung wird im Allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird im Allgemeinen mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung wird nach üblichen Methoden durchgeführt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defoliants, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten auf-

wachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Abutilon, Amaranthus, Ambrosia, Anoda, Anthemis, Aphanes, Atriplex, Bellis, Bidens, Capsella, Carduus, Cassia, Centaurea, Chenopodium, Cirsium, Convolvulus, Datura, Desmodium, Emex, Erysimum, Euphorbia, Galeopsis, Galinsoga, Galium, Hibiscus, Ipomoea, Kochia, Lamium, Lepidium, Lindernia, Matricaria, Mentha, Mercurialis, Mullugo, Myosotis, Papaver, Pharbitis, Plantago, Polygonum, Portulaca, Ranunculus, Raphanus, Rorippa, Rotala, Rumex, Salsola, Senecio, Sesbania, Sida, Sinapis, Solanum, Sonchus, Sphenoclea, Stellaria, Taraxacum, Thlaspi, Trifolium, Urtica, Veronica, Viola, Xanthium.

15

10

5

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Arachis, Beta, Brassica, Cucumis, Cucurbita, Helianthus, Daucus, Glycine, Gossypium, Ipomoea, Lactuca, Linum, Lycopersicon, Nicotiana, Phaseolus, Pisum, Solanum, Vicia.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Aegilops, Agropyron, Agrostis, Alopecurus, 20 Apera, Avena, Brachiaria, Bromus, Cenchrus, Commelina, Cynodon, Cyperus, Dactyloctenium, Digitaria, Echinochloa, Eleocharis, Eleusine, Eragrostis, Eriochloa, Festuca, Fimbristylis, Heteranthera, Imperata, Ischaemum, Leptochloa, Lolium, Monochoria, Panicum, Paspalum, Phalaris, Phleum, Poa, Rottboellia, Sagittaria, 25 Scirpus, Setaria, Sorghum.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Allium, Ananas, Asparagus, Avena, Hordeum, Oryza, Panicum, Saccharum, Secale, Sorghum, Triticale, Triticum, Zea.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung, z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die erfindungsgemäßen Wirkstoffe zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuss-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen sowie zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) zeigen starke herbizide Wirksamkeit und ein breites Wirkungsspektrum bei Anwendung auf dem Boden und auf oberirdische Pflanzenteile. Sie eignen sich in gewissem Umfang auch zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen, sowohl im Vorauflauf- als auch im Nachauflauf-Verfahren.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können in bestimmten Konzentrationen bzw. Aufwandmengen auch zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen und pilzlichen oder bakteriellen Pflanzenkrankheiten verwendet werden. Sie lassen sich gegebenenfalls auch als Zwischen- oder Vorprodukte für die Synthese weiterer Wirkstoffe einsetzen.

25

30

15

Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten

WO 03/093269

- 29 -

PCT/EP03/04137

werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützbaren oder nicht schützbaren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stängel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges Umhüllen.

15

20

25

30

10

5

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie

- 30 -

Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängeln; als Emulgier- und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

20

25

30

5

10

15

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyanin-farbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

-31 -

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden und/oder mit Stoffen, welche die Kulturpflanzen-Verträglichkeit verbessern ("Safenern") zur Unkrautbekämpfung verwendet werden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind. Es sind also auch Mischungen mit Unkrautbekämpfungsmitteln möglich, welche ein oder mehrere bekannte Herbizide und einen Safener enthalten.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise

10

15

20

25

30

5

Acetochlor, Acifluorfen (-sodium), Aclonifen, Alachlor, Alloxydim (-sodium), Ametryne, Amicarbazone, Amidochlor, Amidosulfuron, Anilofos, Asulam, Atrazine, Azafenidin, Azimsulfuron, Beflubutamid, Benazolin (-ethyl), Benfuresate, Bensulfuron (-methyl), Bentazon, Benzfendizone, Benzobicyclon, Benzofenap, Benzoylprop (-ethyl), Bialaphos, Bifenox, Bispyribac (-sodium), Bromobutide, Bromofenoxim, Bromoxynil, Butachlor, Butafenacil (-allyl), Butroxydim, Butylate, Cafenstrole, Caloxydim, Carbetamide, Carfentrazone (-ethyl), Chlomethoxyfen, Chloramben, Chloridazon, Chlorimuron (-ethyl), Chlornitrofen, Chlorsulfuron, Chlortoluron, Cinidon (-ethyl), Cinmethylin, Cinosulfuron, Clefoxydim, Clethodim, Clodinafop (-propargyl), Clomazone, Clomeprop, Clopyralid, Clopyrasulfuron (-methyl), Cloransulam (-methyl), Cumyluron, Cyanazine, Cybutryne, Cycloate, Cyclosulfamuron, Cycloxydim, Cyhalofop (-butyl), 2,4-D, 2,4-DB, Desmedipham, Diallate, Dicamba, Dichlorprop (-P), Diclofop (-methyl), Diclosulam, Diethatyl (-ethyl), Difenzoquat, Diflufenican, Diflufenzopyr, Dimefuron, Dimepiperate, Dimethachlor, Dimethametryn, Dimethenamid, Dimexyflam, Dinitramine, Diphenamid, Diquat, Dithiopyr, Diuron, Dymron, Epropodan, EPTC, Esprocarb, Ethalfluralin, Ethametsulfuron (-methyl), Ethofumesate, Ethoxyfen, Ethoxysulfuron, Etobenzanid, Fenoxaprop (-Pethyl), Fentrazamide, Flamprop (-isopropyl, -isopropyl-L, -methyl), Flazasulfuron, Florasulam, Fluazifop (-P-butyl), Fluazolate, Flucarbazone (-sodium), Flufenacet, Flufenpyr, Flumetsulam, Flumiclorac (-pentyl), Flumioxazin, Flumipropyn, Flumet-

5

10

15

20

25

30

sulam, Fluorochloridone, Fluoroglycofen (-ethyl), Flupoxam, Flupropacil. Flurpyrsulfuron (-methyl, -sodium), Flurenol (-butyl), Fluridone, Fluroxypyr (-butoxypropyl, -meptyl), Flurprimidol, Flurtamone, Fluthiacet (-methyl), Fluthiamide, Fornesafen, Foramsulfuron, Glufosinate (-ammonium), Glyphosate (-isopropylammonium), Halosafen, Haloxyfop (-ethoxyethyl, -P-methyl), Hexazinone, Imazamethabenz (-methyl), Imazamethapyr, Imazamox, Imazapic, Imazapyr, Imazaquin. Imazethapyr, Imazosulfuron, Iodosulfuron (-methyl, -sodium), Ioxynil, Isopropalin, Isoproturon, Isouron, Isoxaben, Isoxachlortole, Isoxaflutole, Isoxapyrifop, Ketospiradox, Lactofen, Lenacil, Linuron, MCPA, Mecoprop, Mefenacet, Mesotrione, Metamitron, Metazachlor, Methabenzthiazuron, Metobenzuron, Metobromuron, (alpha-) Metolachlor, Metosulam, Metoxuron, Metribuzin, Metsulfuron (-methyl), Molinate, Monolinuron, Naproanilide, Napropamide, Neburon, Nicosulfuron, Norflurazon, Orbencarb, Oryzalin, Oxadiargyl, Oxadiazon, Oxasulfuron, Oxaziclomefone, Oxyfluorfen, Paraquat, Pelargonsäure, Pendimethalin, Pendralin, Penoxysulam, Pentoxazone, Pethoxamid, Phenmedipham, Picolinafen, Piperophos, Pretilachlor, Primisulfuron (-methyl), Profluazol, Profoxydim, Prometryn, Propachlor, Propanil, Propaquizafop, Propisochlor, Propoxycarbazone (-sodium), Propyzamide, Prosulfocarb, Prosulfuron, Pyraflufen (-ethyl), Pyrazogyl, Pyrazolate, Pyrazosulfuron (-ethyl), Pyrazoxyfen, Pyribenzoxim, Pyributicarb, Pyridate, Pyridatol, Pyriftalid, Pyriminobac (-methyl), Pyrithiobac (-sodium), Quinchlorac, Quinmerac, Quinoclamine, Quizalofop (-P-ethyl, -P-tefuryl), Rimsulfuron, Sethoxydim, Simazine, Simetryn, Sulcotrione, Sulfentrazone, Sulfometuron (-methyl), Sulfosate, Sulfosulfuron, Tebutam, Tebuthiuron, Tepraloxydim, Terbuthylazine, Terbutryn, Thenylchlor, Thiafluamide, Thiazopyr, Thidiazimin, Thifensulfuron (-methyl), Thiobencarb, Tiocarbazil, Tralkoxydim, Triallate, Triasulfuron, Tribenuron (-methyl), Triclopyr, Tridiphane, Trifluralin, Trifloxysulfuron, Triflusulfuron (-methyl), Tritosulfuron.

Für die Mischungen kommen weiterhin bekannte Safener in Frage, beispielsweise AD-67, BAS-145138, Benoxacor, Cloquintocet (-mexyl), Cyometrinil, 2,4-D, DKA-24, Dichlormid, Dymron, Fenclorim, Fenchlorazol (-ethyl), Flurazole, Fluxofenim,

Furilazole, Isoxadifen (-ethyl), MCPA, Mecoprop (-P), Mefenpyr (-diethyl), MG-191, Oxabetrinil, PPG-1292, R-29148.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

5

10

15

20

25

30

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.

Wie bereits oben erwähnt, können erfindungsgemäß alle Pflanzen und deren Teile behandelt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform werden wild vorkommende oder durch konventionelle biologische Zuchtmethoden, wie Kreuzung oder Protoplastenfusion erhaltenen Pflanzenarten und Pflanzensorten sowie deren Teile behandelt. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden transgene Pflanzen und Pflanzensorten, die durch gentechnologische Methoden, gegebenenfalls in Kombination mit konventionellen Methoden erhalten wurden (Genetically Modified Organisms) und deren Teile behandelt. Der Begriff "Teile" bzw. "Teile von Pflanzen" oder "Pflanzenteile" wurde oben erläutert.

- 34 -

Besonders bevorzugt werden erfindungsgemäß Pflanzen der jeweils handelsüblichen oder in Gebrauch befindlichen Pflanzensorten behandelt. Unter Pflanzensorten versteht man Pflanzen mit bestimmten Eigenschaften ("Traits"), die durch konventionelle Züchtung, durch Mutagenese, oder auch durch rekombinante DNA-Techniken erhalten worden sind. Dies können Sorten, Bio- und Genotypen sein.

5

10

15

20

25

30

Je nach Pflanzenarten bzw. Pflanzensorten, deren Standort und Wachstumsbedingungen (Böden, Klima, Vegetationsperiode, Ernährung) können durch die erfindungsgemäße Behandlung auch überadditive ("synergistische") Effekte auftreten. So sind beispielsweise erniedrigte Aufwandmengen und/oder Erweiterungen des Wirkungsspektrums und/oder eine Verstärkung der Wirkung der erfindungsgemäß verwendbaren Stoffe und Mittel - auch in Kombination mit anderen agrochemischen Wirkstoffen, besseres Wachstum der Kulturpflanzen, erhöhte Toleranz der Kulturpflanzen gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz der Kulturpflanzen gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte möglich, die über die eigentlich zu erwartenden Effekte hinausgehen.

Zu den bevorzugten erfindungsgemäß zu behandelnden transgenen (gentechnologisch erhaltenen) Pflanzen bzw. Pflanzensorten gehören alle Pflanzen, die durch die gentechnologische Modifikation genetisches Material erhielten, welches diesen Pflanzen besondere vorteilhafte wertvolle Eigenschaften ("Traits") verleiht. Beispiele für solche Eigenschaften sind besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte. Weitere und besonders hervorgehobene Beispiele

WO 03/093269

5

10

15

20

25

30

PCT/EP03/04137

für solche Eigenschaften sind eine erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen tierische und mikrobielle Schädlinge, wie gegenüber Insekten, Milben, pflanzenpathogenen Pilzen, Bakterien und/oder Viren sowie eine erhöhte Toleranz der Pflanzen gegen bestimmte herbizide Wirkstoffe. Als Beispiele transgener Pflanzen werden die wichtigen Kulturpflanzen, wie Getreide (Weizen, Reis), Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Raps sowie Obstpflanzen (mit den Früchten Äpfel, Birnen, Zitrusfrüchten und Weintrauben) erwähnt, wobei Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle und Raps besonders hervorgehoben werden. Als Eigenschaften ("Traits") werden besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen Insekten durch in den Pflanzen entstehende Toxine, insbesondere solche, die durch das genetische Material aus Bacillus thuringiensis (z.B. durch die Gene CryIA(a), CryIA(b), CryIA(c), CryIIA, CryIIIA, CryIIIB2, Cry9c Cry2Ab, Cry3Bb und CryIF sowie deren Kombinationen) in den Pflanzen erzeugt werden (im Folgenden "Bt Pflanzen" genannt). Als Eigenschaften ("Traits") werden auch besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr von Pflanzen gegen Pilze, Bakterien und Viren durch Systemische Akquirierte Resistenz (SAR), Systemin, Phytoalexine, Elicitoren sowie Resistenzgene und entsprechend exprimierte Proteine und Toxine. Als Eigenschaften ("Traits") werden weiterhin besonders hervorgehoben die erhöhte Toleranz der Pflanzen gegenüber bestimmten herbiziden Wirkstoffen, beispielsweise Imidazolinonen, Sulfonylharnstoffen, Glyphosate oder Phosphinothricin (z.B. "PAT"-Gen). Die jeweils die gewünschten Eigenschaften ("Traits") verleihenden Gene können auch in Kombinationen miteinander in den transgenen Pflanzen vorkommen. Als Beispiele für "Bt Pflanzen" seien Maissorten, Baumwollsorten, Sojasorten und Kartoffelsorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen YIELD GARD® (z.B. Mais, Baumwolle, Soja), KnockOut® (z.B. Mais), StarLink® (z.B. Mais), Bollgard® (Baumwolle), Nucotn® (Baumwolle) und NewLeaf® (Kartoffel) vertrieben werden. Als Beispiele für Herbizid-tolerante Pflanzen seien Maissorten, Baumwollsorten und Sojasorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen Roundup Ready® (Toleranz gegen Glyphosate z.B. Mais, Baumwolle, Soia), Liberty Link® (Toleranz gegen Phosphinothricin, z.B. Raps), IMI® (Toleranz gegen Imidazolinone) und STS® (Toleranz gegen Sulfonylharnstoffe z.B. Mais) vertrieben werden. Als Herbizid-resistente (konventionell auf

WO 03/093269

- 36 -

PCT/EP03/04137

Herbizid-Toleranz gezüchtete) Pflanzen seien auch die unter der Bezeichnung Clearfield® vertriebenen Sorten (z.B. Mais) erwähnt. Selbstverständlich gelten diese Aussagen auch für in der Zukunft entwickelte bzw. zukünftig auf den Markt kommende Pflanzensorten mit diesen oder zukünftig entwickelten genetischen Eigenschaften ("Traits").

Die aufgeführten Pflanzen können besonders vorteilhaft erfindungsgemäß mit den Verbindungen der allgemeinen Formel I bzw. den erfindungsgemäßen Wirkstoffmischungen behandelt werden, wobei zusätzlich zu der guten Bekämpfung der Unkrautpflanzen die oben genannten synergistischen Effekte mit den transgenen Pflanzen oder Pflanzensorten auftreten. Die bei den Wirkstoffen bzw. Mischungen oben angegebenen Vorzugsbereiche gelten auch für die Behandlung dieser Pflanzen. Besonders hervorgehoben sei die Pflanzenbehandlung mit den im vorliegenden Text speziell aufgeführten Verbindungen bzw. Mischungen.

15

20

10

5

Erfindungsgemäße Wirkstoffe eignen sich auch zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere Insekten, Spinnentieren und Nematoden, die in der Landwirtschaft, in Forsten, im Vorrats- und Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie können vorzugsweise als Pflanzenschutzmittel eingesetzt werden. Sie sind gegen normal sensible und resistente Arten sowie gegen alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam.

25

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können ferner beim Einsatz als Insektizide, Akarizide oder Nematizide in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit Synergisten vorliegen. Synergisten sind Verbindungen, durch die die Wirkung der Wirkstoffe gesteigert wird, ohne dass der zugesetzte Synergist selbst aktiv wirksam sein muss.

30

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren. Die Wirkstoffkonzentration der

- 37 -

Anwendungsformen kann von 0,0000001 bis zu 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,0001 und 1 Gew.-% liegen.

Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepassten üblichen Weise.

5

10

15

20

25

30

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formel (I) eignen sich auch zur Bekämpfung von Arthropoden, die landwirtschaftliche Nutztiere, wie z.B. Rinder, Schafe, Ziegen, Pferde, Schweine, Esel, Kamele, Büffel, Kaninchen, Hühner, Puten, Enten, Gänse, Bienen, sonstige Haustiere wie z.B. Hunde, Katzen, Stubenvögel, Aquarienfische sowie sogenannte Versuchstiere, wie z.B. Hamster, Meerschweinchen, Ratten und Mäuse befallen. Durch die Bekämpfung dieser Arthropoden sollen Todesfälle und Leistungsminderungen (bei Fleisch, Milch, Wolle, Häuten, Eiern, Honig usw.) vermindert werden, so dass durch den Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe eine wirtschaftlichere und einfachere Tierhaltung möglich ist.

Die Anwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geschieht im Veterinärsektor in bekannter Weise durch enterale Verabreichung in Form von beispielsweise Tabletten, Kapseln, Tränken, Drenchen, Granulaten, Pasten, Boli, des feed-through-Verfahrens, von Zäpfchen, durch parenterale Verabreichung, wie zum Beispiel durch Injektionen (intramuskulär, subcutan, intravenös, intraperitonal u.a.), Implantate, durch nasale Applikation, durch dermale Anwendung in Form beispielsweise des Tauchens oder Badens (Dippen), Sprühens (Spray), Aufgießens (Pour-on und Spot-on), des Waschens, des Einpuderns sowie mit Hilfe von wirkstoffhaltigen Formkörpern, wie Halsbändern, Ohrmarken, Schwanzmarken, Gliedmaßenbändern, Halftern, Markierungsvorrichtungen usw.

Bei der Anwendung für Vieh, Geflügel, Haustiere etc. kann man die Wirkstoffe der Formel (I) als Formulierungen (beispielsweise Pulver, Emulsionen, fließfähige Mittel), die die Wirkstoffe in einer Menge von 1 bis 80 Gew.-% enthalten, direkt

- 38 -

oder nach 100 bis 10 000-facher Verdünnung anwenden oder sie als chemisches Bad verwenden.

Die Wirkstoffe eignen sich auch zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere von Insekten, Spinnentieren und Milben, die in geschlossenen Räumen, wie beispielsweise Wohnungen, Fabrikhallen, Büros, Fahrzeugkabinen u.ä. vorkommen. Sie können zur Bekämpfung dieser Schädlinge allein oder in Kombination mit anderen Wirk- und Hilfsstoffen in Haushaltsinsektizid-Produkten verwendet werden. Sie sind gegen sensible und resistente Arten sowie gegen alle Entwicklungsstadien wirksam.

5

10

15

20

Die Anwendung erfolgt in Aerosolen, drucklosen Sprühmitteln, z.B. Pump- und Zerstäubersprays, Nebelautomaten, Foggern, Schäumen, Gelen, Verdampferprodukten mit Verdampferplättchen aus Cellulose oder Kunststoff, Flüssigverdampfern, Gelund Membranverdampfern, propellergetriebenen Verdampfern, energielosen bzw. passiven Verdampfungssystemen, Mottenpapieren, Mottensäckchen und Mottengelen, als Granulate oder Stäube, in Streuködern oder Köderstationen.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

## **Herstellungsbeispiele**

#### Beispiel 1

## 5 (Verfahren (a))

Eine Mischung aus 0,70 g (2,29 mMol) 5-Amino-1-(3-chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-pyrazol-4-carboxamid, 0,27 g (2,52 mMol) Orthoameisensäure-trimethylester, 0,10 g p-Toluolsulfonsäure und 80 ml Toluol wird 12 Stunden unter Rückfluß gerührt. Dann wird diese Mischung mit weiteren 0,14 g Orthoameisensäure-trimethylester versetzt und weitere 12 Stunden unter Rückfluß gerührt. Nach Abkühlen wird die Mischung filtriert und das Filtrat unter vermindertem Druck eingeengt. Der Rückstand wird mit Isopropanol verrührt und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

15

25

10

Man erhält 0,32 g (44 % der Theorie) 1-(3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on vom Schmelzpunkt 331°C. LogP (pH 2): 1,54

#### 20 Beispiel 2

#### (Verfahren (e))

Eine Mischung aus 0,21 g (0,665 mMol) 1-(3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on, 0,11 g (0,80 mMol) Kaliumcarbonat, 0,10 g (0,73 mMol) Methyliodid und 40 ml Acetonitril wird 12 Stunden bei 20°C bis

25°C gerührt und anschließend unter vermindertem Druck eingeengt. Der Rückstand wird dann mit Wasser verrührt, mit konz. Salzsäure angesäuert und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 0,12 g (55 % der Theorie) 1-(3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-5-methyl-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on vom Schmelzpunkt 253°C.

LogP (pH 2): 1,76

## Beispiel 3

(Verfahren (c))

10

15

20

Eine Mischung aus 1,36 g (4,0 mMol) 5-Amino-1-(2,6-dichlor-4-trifluormethylphenyl)-pyrazol-4-carboxamid, 0,61 g (6 mMol) Essigsäureanhydrid und 50 ml Xylol wird 8 Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt und anschließend unter vermindertem Druck eingeengt. Der ölige Rückstand wird mit n-Propanol verrührt und das hierbei kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 0,48g (30 % der Theorie) 1-(2,6-Dichlor-4-trifluormethyl-phenyl)-6-methyl-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on vom Schmelzpunkt 300°C. LogP (pH 2): 2,25

#### Beispiel 4

25 (Verfahren (e))

Eine Mischung aus 0,38 g (1,04 mMol) 1-(2,6-Dichlor-4-trifluormethyl-phenyl)-6-methyl-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on, 0,22 g (1,56 mMol) Methyliodid, 0,22 g (1,56 mMol) Kaliumcarbonat und 30 ml Dimethylformamid wird 6 Stunden bei 20°C bis 25°C gerührt und anschließend unter vermindertem Druck eingeengt. Der Rückstand wird mit Wasser verrührt und mit konz. Salzsäure angesäuert. Das hierbei kristallin angefallene Produkt wird durch Absaugen isoliert.

Man erhält 0,30 g (75,5 % der Theorie) 1-(2,6-Dichlor-4-trifluormethyl-phenyl)-5,6-dimethyl-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on vom Schmelzpunkt 195°C.

10 LogP (pH 2): 2,69

## Beispiel 5

#### (Verfahren (b))

15

20

5

Eine Mischung aus 2,88 g (10 mMol) 5-Amino-1-(3-chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-pyrazol-4-carbonitril, 2,0 g (13 mMol) Cyclopropancarbonsäureanhydrid, 4 Tropfen konz. Schwefelsäure und 80 ml Toluol wird 3 Stunden unter Rückfluß gerührt und anschließend unter vermindertem Druck eingeengt. Der Rückstand wird mit i-Propanol verrührt und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 1,4 g (38 % der Theorie) 1-(3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-6-cyclopropyl-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on vom Schmelzpunkt 239°C.

25 LogP (pH 2): 2,19

### Beispiel 6

#### (Verfahren (d))

Eine Mischung aus 0,29 g (0,74 mMol) 5-(1-Fluor-cyclopropylcarbonyl-amino)-1-(3-chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-pyrazol-4-carboxamid, 20 ml konz. Ammoniak-wasser und 30 ml Ethanol wird 6 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur (ca. 20°C) wird mit Essigsäureethylester extrahiert,die organische Phase über Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel unter vermindertem Druck sorgfältig abdestilliert.

Man erhält 38 mg (12,5 % der Theorie) 6-(1-Fluor-cyclopropyl)-1-(3-chlor-5-trifluor-methyl-pyridin-2-yl)-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on vom Schmelzpunkt 211°C.

15 LogP (pH 2): 2,29

20

Analog zu den Beispielen 1 bis 6 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der allgemeinen Formel (I) und (Ia) hergestellt werden.

Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I) und (Ia)

| BspNr | Q                   | R <sup>1</sup>                | R <sup>2</sup>  | allg. Formel Physikal. Daten |
|-------|---------------------|-------------------------------|-----------------|------------------------------|
| 7     | F <sub>3</sub> C N  | CH <sub>3</sub>               | Н               | (I) $\log P = 1,64^{a}$      |
| 8     | F <sub>3</sub> C N  | CH₃                           | CH <sub>3</sub> | (I) logP = 1,97 a)           |
| 9     | F <sub>3</sub> C CI | CH₃                           | CH <sub>3</sub> | (I)                          |
| 10    | F <sub>3</sub> C    | CH <sub>3</sub>               | CH <sub>3</sub> | (Ia)                         |
| 11    | F <sub>3</sub> C Cl | $ m CH_3$                     | CH <sub>3</sub> | (Ia)                         |
| 12    | F <sub>3</sub> C N  | CHCl <sub>2</sub>             | Н               | (I) $\log P = 2,39^{a}$      |
| 13    | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> | н               | (I) $\log P = 2.39^{a}$      |
| 14    | F <sub>3</sub> C F  | $\mathrm{C_2H_5}$             | CH₃             | (I)                          |
| 15    | F <sub>3</sub> C N  | $\mathrm{C_2H_5}$             | CH <sub>3</sub> | (Ia)                         |
| 16    | F <sub>3</sub> C N  | $C_2H_5$                      | CH <sub>3</sub> | $\log P = 2,46^{a}$          |

| BspNr | Q                   | R <sup>1</sup>                   | R <sup>2</sup>                | allg. Formel Physikal. Daten |
|-------|---------------------|----------------------------------|-------------------------------|------------------------------|
| 17    | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | Н                             | (I) $logP = 2,36^{a}$        |
| 18    | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH₃                           | (I) $logP = 2,89^{a}$        |
| 19    | F <sub>3</sub> C Cl | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH₃                           | (I)                          |
| 20    | F <sub>3</sub> C Cl | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH₃                           | (Ia)                         |
| 21    | F <sub>3</sub> C CI | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> | (I)                          |
| 22    | F <sub>3</sub> C Cl | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | $\mathrm{C_2H_5}$             | (Ia)                         |
| 23    | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n | Н                             | $\log P = 2,28^{a}$          |
| 24    | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n | CH <sub>3</sub>               | $\log P = 2.81^{a}$          |
| 25    | F <sub>3</sub> C    | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i | Н                             | (I) $\log P = 2.52^{a}$      |
| 26    | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t | Н                             | $\log P = 2.74^{a}$          |

| BspNr | Q                   | $\mathbb{R}^1$                                 | $\mathbb{R}^2$  | allg. Formel Physikal. Daten |
|-------|---------------------|--|-----------------|------------------------------|
| 27    | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t               | CH <sub>3</sub> | (Ia) $\log P = 2.74^{a}$     |
| 28    | F <sub>3</sub> C N  | H <sub>2</sub> H<br>C C C CH <sub>3</sub>      | CH <sub>3</sub> | (I) $\log P = 2,62^{a}$      |
| 29    | F <sub>3</sub> C N  | H <sub>2</sub> CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> | CH <sub>3</sub> | (I) $logP = 2,84^{a}$        |
| 30    | F <sub>3</sub> C N  | H <sub>2</sub> CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> | CH <sub>3</sub> | (Ia)                         |
| 31    | F <sub>3</sub> C N  | H <sub>2</sub> H<br>C C C<br>CH <sub>3</sub>   | H               | (I) $\log P = 2.55^{a}$      |
| 32    | F <sub>3</sub> C    | H <sub>2</sub> H<br>C CH <sub>3</sub>          | CH <sub>3</sub> | (I) $\log P = 2,77^{a}$      |
| 33    | F <sub>3</sub> C N  | H <sub>2</sub> H<br>C CH <sub>3</sub>          | CH <sub>3</sub> | (Ia) $\log P = 4.84^{a}$     |
| 34    | F <sub>3</sub> C N  | CH <sub>3</sub>                                | Н               | (I)                          |
| 35    | F <sub>3</sub> C CI | H <sub>2</sub> H<br>C C CH <sub>3</sub>        | CH <sub>3</sub> | (I)                          |
| 36    | F <sub>3</sub> C CI | H <sub>2</sub> H<br>C CH <sub>3</sub>          | СН₃             | (Ia)                         |

|       |                     | T***                          |  |                              |
|-------|---------------------|-------------------------------|--|------------------------------|
| BspNr | Q                   | R <sup>1</sup>                | R <sup>2</sup>                                   | allg. Formel Physikal. Daten |
| 37    | F <sub>3</sub> C    | CF <sub>3</sub>               | Н  | (I) $log P = 2,42^{a}$       |
| 38    | F <sub>3</sub> C N  | CF <sub>3</sub>               | CH <sub>3</sub>                                  | (I) $\log P = 3.11^{a}$      |
| 39    | F <sub>3</sub> C N  | CF <sub>3</sub>               | CH₃  | (Ia) $\log P = 3.99^{a}$     |
| 40    | F <sub>3</sub> C CI | CF <sub>3</sub>               | $\mathrm{C_2H_5}$                                | (I)                          |
| 41    | F <sub>3</sub> C N  | CF <sub>3</sub>               | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>                    | (Ia)                         |
| 42    | F <sub>3</sub> C N  | CF <sub>3</sub>               | CH <sub>2</sub> COOC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> | (Ia) $\log P = 4.05^{a}$     |
| 43    | F <sub>3</sub> C N  | CF₂C1                         | н  | (I) $\log P = 2.53^{a}$      |
| 44    | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>2</sub> F <sub>5</sub> | н  | (I) $\log P = 2.84^{a}$      |
| 45    | F <sub>3</sub> C N  | $C_2F_5$                      | CH <sub>3</sub>                                  | (Ia)                         |
| 46    | F <sub>3</sub> C N  | COOC₂H₅                       | CH₃  | (I) $logP = 2,74^{a}$        |
| 47    | F <sub>3</sub> C CI |                               | Н  | (I)                          |

| BspNr | Q                               | $\mathbb{R}^1$ | $\mathbb{R}^2$                   | allg. Formel Physikal. Daten |
|-------|---------------------------------|----------------|----------------------------------|------------------------------|
| 48    | F <sub>3</sub> C Cl             | $\triangle$    | CH <sub>3</sub>                  | (I)                          |
| 49    | F <sub>3</sub> C C <sub>I</sub> | $\triangle$    | CH <sub>3</sub>                  | (Ia)                         |
| 50    | F <sub>3</sub> C N              |                | $\mathrm{C_2H_5}$                | $\log P = 2,96^{a}$          |
| 51    | F <sub>3</sub> C N              | $\triangle$    | $\mathrm{C_2H_5}$                | (Ia) $\log P = 4,42^{a}$     |
| 52    | F <sub>3</sub> C N              |                | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | (Ia) $\log P = 4.86^{a}$     |
| 53    | GI<br>N<br>F <sub>3</sub> C     |                | H                                | (I)                          |
| 54    | F <sub>3</sub> C F              | $\triangle$    | CH <sub>3</sub>                  | (I)                          |
| 55    | F <sub>3</sub> C F              | $\triangle$    | CH <sub>3</sub>                  | (Ia)                         |
| 56    | F <sub>3</sub> C N              |                | CH                               | (I) $\log P = 2.95^{a}$      |
| 57    | F <sub>3</sub> C N              |                | CHF <sub>2</sub>                 | (Ia) $\log P = 4.24^{a}$     |

| BspNr | Q                  | $\mathbb{R}^1$ | $\mathbb{R}^2$                                   | allg. Formel Physikal. Daten |
|-------|--------------------|----------------|--|------------------------------|
| 58    | F <sub>3</sub> C N | $\triangle$    | CH <sub>2</sub> COOC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> | (Ia) $\log P = 3.88^{a}$     |
| 59    | F <sub>3</sub> C N | F              | CH <sub>3</sub>                                  | (I) $\log P = 2.82^{a}$      |
| 60    | F <sub>3</sub> C N | F              | CH₃  | (Ia) $\log P = 3.73^{a}$     |
| 61    | F <sub>3</sub> C N | CI             | CH <sub>3</sub>                                  | (I)                          |
| 62    | F <sub>3</sub> C N | CI             | CH <sub>3</sub>                                  | (Ia)                         |
| 63    | F <sub>3</sub> C N | 口              | Н  | (I) $logP = 2,46^{a}$        |
| 64    | F <sub>3</sub> C N | 户              | CH <sub>3</sub>                                  | (I) $\log P = 3.03^{a}$      |
| 65    | F <sub>3</sub> C N |                | CH <sub>3</sub>                                  | (I) $\log P = 3.36^{a}$      |
| 66    | F <sub>3</sub> C N | °              | Н  | (I) $\log P = 1,86^{a}$      |
| 67    | F <sub>3</sub> C N | °              | CH <sub>3</sub>                                  | (I) $\log P = 2.13^{a}$      |
| 68    | F <sub>3</sub> C N |                | CH <sub>3</sub>                                  | (I) $\log P = 2.94^{a}$      |

| BspNr  | Q                                      | $\mathbb{R}^1$                   | $\mathbb{R}^2$  | allg. Formel             |
|--------|--|----------------------------------|-----------------|--------------------------|
| Dsp141 |  |                                  |                 | Physikal. Daten          |
| 69     | F <sub>3</sub> C                       |                                  | CH <sub>3</sub> | $\log P = 4,78^{a}$      |
| 70     | CI                                     | CH <sub>3</sub>                  | CH <sub>3</sub> | (I)                      |
| 71     | CI                                     | CH <sub>3</sub>                  | CH <sub>3</sub> | (Ia)                     |
| 72     | CI                                     | CF <sub>3</sub>                  | CH <sub>3</sub> | (Ia) $\log P = 3.76^{a}$ |
| 73     | O Br<br>CHF <sub>2</sub>               | $\triangle$                      | Н               | (I)                      |
| 74     | O Br                                   | $\triangle$                      | CH <sub>3</sub> | (I)                      |
| 75     | H <sub>3</sub> C N Br CHF <sub>2</sub> | $\triangle$                      | CH₃             | (Ia)                     |
| 76     | NC NC                                  | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH <sub>3</sub> | (I)                      |
| 77     | NC N                                   | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH <sub>3</sub> | (Ia)                     |
| 78     | NC Z                                   |                                  | CH <sub>3</sub> | (I)                      |

| BspNr | Q                     | R <sup>1</sup>                   | R <sup>2</sup>  | allg. Formel Physikal. Daten |
|-------|-----------------------|----------------------------------|-----------------|------------------------------|
| 79    | NC NC                 |                                  | CH <sub>3</sub> | (Ia)                         |
| 80    | CI                    | $\triangle$                      | CH <sub>3</sub> | (I) $\log P = 2.30^{a}$      |
| 81    | F <sub>3</sub> C      | CH <sub>3</sub>                  | CH₃             | (I) $log P = 2,30^{a}$       |
| 82    | CF <sub>3</sub>       |                                  | CH <sub>3</sub> | (I)                          |
| 83    | CF <sub>3</sub>       | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH <sub>3</sub> | (Ia)                         |
| 84    | F <sub>3</sub> C      | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH <sub>3</sub> | (I) $\log P = 3.52^{a}$      |
| 85    | F <sub>3</sub> C Cl   | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH <sub>3</sub> | (I) $log P = 3.78^{a}$       |
| 86    | CI<br>CF <sub>3</sub> |                                  | $ m CH_3$       | (I)                          |
| 87    | CI<br>CF <sub>3</sub> | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | $ m CH_3$       | (I)                          |
| 88    | CI<br>CF <sub>3</sub> |                                  | CH <sub>3</sub> | (I)                          |

| Day Na | 0   | $\mathbb{R}^1$                          | $\mathbb{R}^2$  | allg. Formel            |
|--------|---|---|-----------------|-------------------------|
| BspNr  | Q   | K                                       | K               | Physikal. Daten         |
| 89     | F <sub>3</sub> C Cl   | H <sub>2</sub> H<br>C C CH <sub>3</sub> | CH <sub>3</sub> | (I)                     |
| 90     | F <sub>3</sub> C Cl   | CH <sub>3</sub>                         | CH <sub>3</sub> | (Ia)                    |
| 91     | H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>                              | СН₃                                     | CH <sub>3</sub> | (I) $\log P = 1,53^{a}$ |
| 92     | H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>                              |   | Н               | (I) $logP = 1,71^{a}$   |
| 93     | H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>                              |   | CH <sub>3</sub> | (I) $\log P = 2.04^{a}$ |
| 94     | CI<br>CF <sub>3</sub>   | C₃H <sub>7</sub> -i                     | CH₃             | (I)                     |
| 95     | C <sub>2</sub> S C <sub>1</sub> C <sub>2</sub> S C <sub>1</sub> | C₃H <sub>7</sub> -i                     | CH <sub>3</sub> | (Ia)                    |
| 96     | H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>                              | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i        | CH <sub>3</sub> | (I)                     |

| BspNr | Q                                      | $\mathbb{R}^1$                   | $\mathbb{R}^2$  | allg. Formel                                    |
|-------|--|----------------------------------|-----------------|---|
|       |  |                                  |                 | Physikal. Daten                                 |
| 97    | H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>     | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i | CH <sub>3</sub> | (Ia)  |
| 98    | H <sub>3</sub> C N CI CHF <sub>2</sub> | CH <sub>3</sub>                  | Н               | (I)<br>$logP = 1,40^{a}$<br>$Fp = 254^{\circ}C$ |
| 99    | H <sub>3</sub> C N CI CHF <sub>2</sub> | CH₃                              | CH <sub>3</sub> | (I) $logP = 1,68^{a}$ Fp = 199°C                |
| 100   | H <sub>3</sub> C N CI CHF <sub>2</sub> | CH <sub>3</sub>                  | CH <sub>3</sub> | (Ia)  |
| 101   | H <sub>3</sub> C N O CHF <sub>2</sub>  | $\triangle$                      | н               | (I) $logP = 1,59^{a}$                           |
| 102   | H <sub>3</sub> C N O CHF <sub>2</sub>  | $\triangle$                      | CH₃             | (I) $\log P = 1,90^{a}$                         |
| 103   | H <sub>3</sub> C N O CHF <sub>2</sub>  | $\triangle$                      | СН₃             | (Ia) $\log P = 3.02^{a}$                        |
| 104   | CI<br>CF <sub>3</sub>                  | $\triangle$                      | CH₃             | (I)   |

| BspNr | Q                                      | $\mathbb{R}^1$      | $\mathbb{R}^2$  | allg. Formel<br>Physikal. Daten  |
|-------|--|---------------------|-----------------|----------------------------------|
| 105   | CF <sub>3</sub>                        | C₃H <sub>7</sub> -i | CH <sub>3</sub> | (Ia)                             |
| 106   | H <sub>3</sub> C N CI CHF <sub>2</sub> |                     | Н               | (I) $logP = 1,85^{a}$ Fp = 210°C |
| 107   | H <sub>3</sub> C N CI CHF <sub>2</sub> |                     | CH₃             | (I) $logP = 2,21^{a}$ Fp = 220°C |
| 108   | H <sub>3</sub> C N CI CHF <sub>2</sub> |                     | CH₃             | (Ia)                             |
| 109   | F <sub>3</sub> C N                     | $\triangle$         | CH <sub>3</sub> | (I) $\log P = 2.61^{a}$          |
| 110   | F <sub>3</sub> C N                     | $\triangle$         | CH <sub>3</sub> | (Ia) $\log P = 3.97^{a}$         |

Die Bestimmung der in der Tabelle angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

5

(a) Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich: 0,1% wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10% Acetonitril bis 90% Acetonitril - entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit a) markiert.

- (b) Eluenten für die Bestimmung im neutralen Bereich: 0,01-molare wässrige Phosphatpuffer-Lösung, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit b) markiert.
- Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).
- Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

Die oben in Tabelle 1 als <u>Beispiele 109 und 110</u> aufgeführten Verbindungen können beispielsweise wie folgt hergestellt werden:

15

20

25

Eine Mischung aus 0,80 g (2,25 mMol) 1-(3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-6-cyclopropyl-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on (vgl. Beispiel 5), 0,31 g (2,47 mMol) Dimethylsulfat, 0,37 g (2,7 mMol) Kaliumcarbonat und 40 ml N,N-Dimethyl-formamid wird 12 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt und anschließend unter vermindertem Druck eingeengt. Der Rückstand wird mit Wasser verrührt, mit konz. Salzsäure angesäuert, mit Essigsäureethylester extrahiert, über Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird unter vermindertem Druck eingeengt. Zur Reinigung werden 0,90 g des als Rückstand erhaltenen Rohproduktes über eine Kieselgelsäule (Toluol / Essigester, Vol.: 1:1) chromatografiert.

- 55 -

Man erhält 0,22 g (26 % der Theorie) 1-(3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-4-methoxy-6-cyclopropyl-pyrazolo-pyrimidin-4-on vom Schmelzpunkt 142°C (LogP (pH 2): 3,97) und 0,56 g (63 % der Theorie) 1-(3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-5-methyl-6-cyclopropyl-1,5-dihydro-pyrazolo[3,4-d]pyrimidin-4-on vom Schmelzpunkt 121°C (LogP (pH 2): 2,61).

' **-** 56 -

### Ausgangsstoffe der Formel (II):

## Beispiel (II-1)

5

10

15 g (52 mMol) 5-Amino-1-(3-chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-pyrazol-4-carbo-nitril werden in 150 ml 98%iger Schwefelsäure 4 Stunden bei 60°C gerührt. Die auf 20°C abgekühlte Lösung wird anschließend mit 800 ml Eiswasser verrührt. Die Lösung wird dann dreimal mit Essigsäureethylester und dreimal mit Methylenchlorid extrahiert. Die vereinigten organischen Phasen werden über Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel unter vermindertem Druck sorgfältig abdestilliert.

15

Man erhält 14,8 g (94 % der Theorie) 5-Amino-1-(3-chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-pyrazol-4-carboxamid vom Schmelzpunkt 196°C (LogP (pH 2): 1,46).

Analog zu Beispiel (II-1) können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 2 aufgeführten Verbindungen der Formel (II) hergestellt werden.

Tabelle 2: Beispiele für die Verbindungen der Formel (II)

| BspNr. | Q                   | Physikal. Daten   |
|--------|---------------------|-------------------|
| II-2   | CI                  | $logP = 1,02^{a}$ |
| II-3   | F <sub>3</sub> C Cl | $logP = 1,02^{a}$ |
| II-4   | NC N                |                   |
| II-5   | F <sub>3</sub> C    |                   |

- 58 -

## Ausgangsstoffe der Formel (VI):

### Beispiel (VI-1)

5

4,86 g (15,9 mMol) 5-Amino-1-(3-chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-pyrazol-4carboxamid werden in 50 ml Acetonitril, bei Raumtemperatur (ca. 20°C) portionsweise mit 0,80 g (31,8 mMol) Natriumhydrid (80%ig in Paraffin) versetzt, 10 Minuten nachgerührt, mit 3,9 g (31,8 mMol) 1-Fluor-cyclopropancarbonsäurechlorid versetzt und dann 12 Stunden bei Raumtemperatur gerührt. Nach Einengen unter vermindertem Druck wird der Rückstand mit Wasser versetzt und mit konz. Salzsäure angesäuert. Das hierbei kristallin angefallene Produkt wird durch Absaugen isoliert.

15

10

Man erhält 3,1 g (46 % der Theorie) 5-(1-Fluor-cyclopropylcarbonylamino)-1-(3chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-pyrazol-4-carboxamid, Schmelzpunkt vom 204°C (LogP (pH 2): 2,02).

Analog zu Beispiel (VI-1) können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 3 aufgeführten Verbindungen der Formel (VI) hergestellt werden.

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ N & & & \\ N &$$

Tabelle 3: Beispiele für die Verbindungen der Formel (VI)

| BspNr. | Q                   | R <sup>1</sup>                                      | Physikal. Daten   |
|--------|---------------------|---|-------------------|
| VI-2   | F <sub>3</sub> C N  | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t                    | $logP = 2,20^{a}$ |
| VI-3   | F <sub>3</sub> C N  | C(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl | $logP = 2,26^{a}$ |
| VI-4   | CI                  | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t                    |                   |
| VI-5   | F <sub>3</sub> C CI | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t                    |                   |
| VI-6   | NC CI               | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t                    |                   |
| VI-7   | F <sub>3</sub> C    | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t                    |                   |

- 60 -

#### Anwendungsbeispiele:

### Beispiel A

5 Pre-emergence-Test (Herbizide Wirkung)

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach 24 Stunden wird der Boden so mit der Wirkstoffzubereitung besprüht, daß die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge pro Flächeneinheit ausgebracht wird. Die Wirkstoffkonzentration in der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 Liter Wasser pro Hektar die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge ausgebracht wird.

20

25

30

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 8, 16, 18, 24, 27, 32, 33, 57, 59, 60, 64, 66, 67, 80, 92 und 109 bei zum Teil guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Mais, Weizen und Zuckerrüben, starke Wirkung gegen Unkräuter.

- 61 -

## Beispiel B

Post-emergence-Test (Herbizide Wirkung)

5 Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5-15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

20 Es bedeuten:

10

15

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle) 100 % = totale Vernichtung

In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 6, 16, 18, 24, 27, 31, 32, 33, 39, 57, 59, 60, 64, 66, 67, 69, 80, 85, 92, 109 und 110 bei teilweise guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Weizen, starke Wirkung gegen Unkräuter.

WO 03/093269

## Beispiel C

Meloidogyne-Test (Nematizide Wirkung)

5 Lösungsmittel:

7 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator:

2 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Gefäße werden mit Sand, Wirkstofflösung, Meloidogyne incognita-Ei-Larven-Suspension und Salatsamen gefüllt. Die Salatsamen keimen und die Pflänzchen entwickeln sich. An den Wurzeln entwickeln sich die Gallen.

15

10

Nach der gewünschten Zeit wird die nematizide Wirkung an Hand der Gallenbildung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, dass keine Gallen gefunden wurden; 0 % bedeutet, dass die Zahl der Gallen an den behandelten Pflanzen der der unbehandelten Kontrolle entspricht.

20

Bei diesem Test zeigen z. B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele gute Wirksamkeit: 16 und 80.

#### Patentansprüche

### 1. Verbindungen der Formel (I)

$$\begin{array}{c|c}
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\
 & & \\$$

in welcher

Q für jeweils durch mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Halogen und jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Aryl oder Heteroaryl mit jeweils bis zu 10 Kohlenstoffatomen und gegebenenfalls bis zu 5 Stickstoffatomen und/oder gegebenenfalls einem Sauerstoff- oder Schwefelatom steht,

15

20

25

10

5

R<sup>1</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy-carbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl oder C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit jeweils bis zu 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls bis zu 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Hetero-

cyclyl mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, bis zu 5 Stickstoffatomen und/oder einem Sauerstoff- oder Schwefel-atom steht, und

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl oder C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkinyl steht,

mit Ausnahme von 1,5-Dihydro-6-methyl-1-(2,4,6-trichlor-phenyl)-4H-pyrazolo-[3,4-d]-pyrimidin-4-on.

2. Verbindungen der Formel (Ia)

$$\mathbb{R}^{2}$$
 $\mathbb{R}^{1}$ 
 $\mathbb{R}^{1}$ 
 $\mathbb{R}^{1}$ 
 $\mathbb{R}^{1}$ 

15

25

5

10

in welcher

Q, R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

- 20 3. Verbindungen der Formel (I) und (Ia) gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass
  - Q für jeweils durch mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, jeweils gegebenenfalls durch 1 bis 3 Fluor- und/oder Chlor-atome substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlen-

 $R^1$ 

stoffatomen oder Heteroaryl mit bis zu 5 Kohlenstoffatomen, bis zu 3 Stickstoffatomen und/oder gegebenenfalls einem Sauerstoff-oder Schwefelatom steht,

5

10

15

20

25

30

für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C2-C5-Alkenyl oder C2-C5-Alkinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluroethoxy substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls bis zu 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, noder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluroethoxy substituiertes Heterocyclyl mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen, bis zu 4 Stickstoffatomen und/oder einem Sauerstoffoder Schwefelatom steht, und

 $\mathbb{R}^2$ 

für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxy-

WO 03/093269

carbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl substituiertes  $C_1$ - $C_5$ -Alkyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes  $C_2$ - $C_5$ -Alkenyl oder  $C_2$ - $C_5$ -Alkinyl steht.

PCT/EP03/04137

5 4. Verbindungen der Formeln (I) und (Ia) gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass

10

Q

.

15

20

25

R<sup>1</sup>

30

für Phenyl, Pyridinyl, Pyrimidinyl, Pyrazolyl, Furyl oder Thienyl steht, die jeweils durch mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Fluormethyl, Chlormethyl, Brommethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Bromethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Chlorfluorethyl, Trifluorethyl, Trichlorethyl, Chlordifluorethyl, Fluordichlorethyl, Tetrafluorethyl, Pentafluorethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluorethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordi-Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylfluormethylthio, sulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl und Trifluormethylsulfonyl substituiert sind,

für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, n-, i-, s- oder t-Butoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor,

WO 03/093269

5

10

15

pentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, noder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Pyridinyl, Pyri-

midinyl, Furyl, Tetrahydrofuryl oder Thienyl steht, und

Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclo-

20 R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl steht.

- 68 -

5. Verbindungen der Formeln (I) und (Ia) gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass

5

Q

 $R^1$ 

für Phenyl steht, welches mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten in 2- und 4-Position und gegebenenfalls einen weiteren Substituenten in 6-Position enthält, wobei die Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluorethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl und Trifluormethylsulfonyl ausgewählt sind,

15

10

für Wasserstoff, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Chlorfluorethyl, Trifluorethyl, Tetrafluorethyl, Pentafluorethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, für Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Fluorpropenyl, Chlorpropenyl, Difluorpropenyl, Dichlorpropenyl, Chlorfluorpropenyl, Fluorbutenyl, Chlorbutenyl, Difluorbutenyl, Dichlorbutenyl, Chlorfluorbutenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlor-Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, methyl,

25

20

5

10

15

20

25

30

Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluor-methoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlordifluorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlordifluorethoxy, Ch

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl steht.

- 6. Verbindungen der Formeln (I) und (Ia) gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass
  - Q für Pyridin-2-yl steht, welches mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten in 3- und 5-Position und gegebenenfalls einen weiteren Substituenten in 6-Position enthält, wobei die Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlordifluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluorethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluorethoxy, Trifluorethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluorethoxy,

 $R^1$ 

methylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl ausgewählt sind,

5

10

15

20

25

30

für Wasserstoff, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Chlorfluorethyl, Trifluorethyl, Tetrafluorethyl, Pentafluorethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, für Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Fluorpropenyl, Chlorpropenyl, Difluorpropenyl, Chlorfluorpropenyl, Fluorbutenyl, Chlorbutenyl, Difluorbutenyl, Dichlorbutenyl, Chlorfluorbutenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlor-Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, methyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Pyridinyl, Pyrimidinyl, Furyl, Tetrahydrofuryl oder Thienyl steht, und

- 71 -

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl steht.

7. Verbindungen der Formeln (I) oder (Ia) gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass

10

15

5

Q für Pyrazol-3-yl steht, welches mindestens zwei gleiche oder verschiedene Substituenten in 1- und 5-Position und gegebenenfalls einen weiteren Substituenten in 4-Position enthält, wobei die Substituenten aus der Reihe Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Trifluorethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl ausgewählt sind,

25

20

R<sup>1</sup> für Wasserstoff, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Chlorfluorethyl, Trifluorethyl, Tetrafluorethyl, Pentafluorethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, für Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Fluorpropenyl, Chlorpropenyl, Difluorpropenyl, Dichlorpropenyl, Chlorfluor-

WO 03/093269

propenyl, Fluorbutenyl, Chlorbutenyl, Difluorbutenyl, Dichlorbutenyl, Chlorfluorbutenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlor-Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Phenylethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluorethoxy, Chlorethoxy, Difluorethoxy, Dichlorethoxy, Chlorfluorethoxy, Chlordifluorethoxy oder Trifluorethoxy substituiertes Pyridinyl, Pyrimidinyl, Furyl, Tetrahydrofuryl oder Thienyl steht, und

20

25

15

5

10

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Pentenyl, Propinyl, Butinyl oder Pentinyl steht.

- 73 -

8. Verfahren zum Herstellen von Verbindungen der Formeln (I) und (Ia) gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass man

a) Verbindungen der Formel (II)

5

in welcher

Q die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat,

10

mit Verbindungen der Formel (III)

$$R^1$$
-(OR')<sub>3</sub> (III)

in welcher

15

R<sup>1</sup> die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat und

R' für Alkyl steht,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt,

oder dass man

- 74 -

(b) Verbindungen der Formel (IV)

in welcher

5 Q die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat,

mit Verbindungen der Formel (V)

$$O \nearrow R^1$$

$$O \nearrow O$$

$$R^1$$

$$(V)$$

in welcher

10

15

20

R<sup>1</sup> die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt,

oder dass man

(c) Verbindungen der Formel (II)

$$NH_2$$
 $NH_2$ 
 in welcher

Q die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat,

5 mit Verbindungen der Formel (V)

$$O \nearrow R^1$$

$$O \nearrow O$$

$$(V)$$

in welcher

10 R<sup>1</sup> die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt,

oder dass man

(d) Verbindungen der Formel (VI)

$$\begin{array}{c} O \\ NH_2 \\ NH \\ Q \\ O \\ R^1 \end{array} \hspace{1cm} (VI)$$

in welcher

15

Q und R<sup>1</sup> die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Kondensationshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt,

5 oder dass man

## (e) Verbindungen der Formel (Ib)

in welcher

10

Q und R<sup>1</sup> die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

mit Alkylierungs-, Alkenylierungs- oder Alkinylierungsmitteln der Formel (VII)

15

$$X-R^2$$
 (VII)

oder der Formel (VIII)

20

$$R^2$$
-O-SO<sub>2</sub>-O- $R^2$  (VIII)

worin jeweils

R<sup>2</sup> die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat und

25

X für Halogen steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Verdünnungsmittel umsetzt.

# 5 9. Verbindungen der Formel (II)

$$\begin{array}{c} O \\ NH_2 \\ NH_2 \\ \end{array} (II)$$

in welcher

- 10 Q die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat.
  - 10. Verbindungen der Formel (VI)

$$\begin{array}{c} O \\ NH_2 \\ NH \\ Q \\ O \\ R^1 \end{array} \hspace{1cm} (VI)$$

in welcher

Q und  $R^1$  die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

10

11. Verbindungen der Formel (Ib)

in welcher

5 Q und R<sup>1</sup> die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben.

12. Pflanzenbehandlungsmittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt von mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 und üblichen Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Substanzen.

13. Verwendung von mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 oder eines Mittels gemäß Anspruch 12 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen und/oder Nematoden.

15 14. Verfahren zum Bekämpfen von unerwünschten Pflanzen und/oder Nematoden, dadurch gekennzeichnet, dass man mindestens eine Verbindung gemäß einer der Ansprüche 1 bis 7 oder ein Mittel gemäß Anspruch 12 auf die Pflanzen und/oder Nematoden und/oder ihren Lebensraum einwirken lässt.